

JAERI-Tech  
97-018



高繰り返し全固体波長可変レーザーの発振特性

1997年3月

丸山庸一郎・加藤政明・原山清香・大場正規

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1997

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 (株)原子力資料サービス

高繰り返し全固体波長可変レーザーの発振特性

日本原子力研究所東海研究所燃料研究部  
丸山庸一郎・加藤 政明・原山 清香・大場 正規

(1997年2月14日受理)

全固体の高繰り返し波長可変レーザーは、高平均出力、高エネルギーなどの特長を有し、原子分光、共鳴イオン化分光、レーザー同位体分離などへの利用が期待される。このため半導体レーザー励起のNd:YAGレーザーでポンピングされる繰り返し数1kHzの波長可変チタンサファイアレーザーを試作し、その発振特性を測定した。Nd:YAGレーザーで発生する基本波は2個の非線形結晶(KTP)によって第二高調波に変換する。最初の結晶で変換された第二高調波はチタンサファイア増幅器のポンピングに、また2個目のKTP結晶によって変換された第二高調波はチタンサファイア発振器のポンピングに使用する。発振器及び増幅器へ入力されるポンピング光の平均出力は、それぞれ3W及び17Wである。この時のチタンサファイアレーザー発振器の平均出力は300mW、増幅器出口での平均出力は1.6Wでエネルギー抽出効率は約12%である。抽出効率はチタンサファイア結晶温度の最適化及びマルチパス増幅を利用することなどによって向上させることが可能である。

A study on High Repetition Rate All-solid-state  
Wavelength Tunable Ti:Sapphire Laser

Yoichiro MARUYAMA, Masaaki KATO, Sayaka HARAYAMA, Masanori OBA

Department of Chemistry and Fuel Research  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received February 14, 1997)

All solid state high repetition rate wavelength tunable laser is a very attractive light source for the applications of atomic spectroscopy, resonance ionization spectroscopy, laser isotope separation. For these purposes, we have been carrying out the development of a wavelength tunable Ti:Sapphire laser pumped by a laser diode pumped Nd:YAG laser which is operated at the pulse repetition frequency of 1 kHz. The average power of the Nd:YAG laser is around 40W at the wavelength of 1064 nm. By using two KTP crystals, the fundamental laser radiation is converted to second harmonic, and the depleted fundamental laser radiation is converted to second harmonic again. These two green laser beams are used to pump Ti:Sapphire oscillator and amplifier, respectively. The pumping power for the oscillator is around 3W and for the amplifier 17W. The average output power of the Ti:Sapphire oscillator is around 300mW and the output average power of the amplifier is 1.6W. The energy extraction efficiency of the system is around 12%. The extraction efficiency will be improved by the optimization of Ti:Sapphire temperature and the use of multi-pass amplification.

Keywords: Ti:Sapphire Laser, Wavelength Tunable, All-solid State, LD-pumped Nd:YAG Laser, High Repetition Rate, High Average Power

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 実験装置 .....	2
3. 実験結果と考察 .....	3
4. まとめ .....	5
参考文献 .....	6

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Experimental .....	2
3. Results and Discussions .....	3
4. Conclusion .....	5
References .....	6

## 1. はじめに

波長可変レーザーは、任意の波長を発生できることから原子分光、共鳴イオン化分光、同位体分離など多くの分野で利用されている<sup>1,2,3,4</sup>。波長可変レーザーとして、有機色素をアルコール等の溶媒に溶かした色素レーザーが多く使われてきたが、最近、波長可変固体レーザー結晶や或いは光パラメトリック発振など固体素子を使った波長可変レーザーも利用されはじめています。しかし、これらのレーザーは、色素レーザーがレーザー媒質に溶液を使うためその損傷などが無く、数kHzから百MHz程度の非常に波長幅の狭い単一周波数発振が可能であるなどの利点を有する一方<sup>6)</sup>、溶液を取り扱うために装置が大がかりになり、また有機色素の発振波長域が狭いため近紫外から近赤外域でしか発振できず、その波長をカバーするためには多数の色素の交換が必要になるなど取り扱いが容易ではない。また、固体波長可変レーザーの一つである光パラメトリック発振は、1個の結晶で可視から赤外までのこれまでになく広い波長域でレーザー発振が可能となり、色素レーザーに比べて大幅なコンパクト化が達成できる。しかし、繰り返し数が高くなると結晶への平均入力が高くなり、結晶の損傷や光の吸収による結晶の温度変化などのために出力が低下する。このため、現在その繰り返し数は、現在のところ熱の影響が少ない10~20 Hz程度に限られており、S/Nの向上などを目的とした発振繰り返し数の増大や高出力化には今後さらに研究開発が必要である。

波長可変固体レーザーで高繰り返し・高平均出力を実現するためには現在のところ熱特性に優れ、蓄積エネルギーの大きなサファイア結晶にTiイオンをドーブしたTi:Sapphireを利用することが最も現実的であり10 Hz程度の低い繰り返しでは数百mJのパルスエネルギーも得られている<sup>7)</sup>。

我々はこれまで発振繰り返し数10 Hzの単一周波数Ti:サファイアレーザー発振器やその波長変換の研究を行ってきた。同時に、その高繰り返し化を目指してポンプレーザーの高繰り返し化、高平均出力化のための研究開発を進めている<sup>8,9)</sup>。Ti:サファイア結晶をレーザー媒質とする波長可変レーザーにおいて高繰り返し発振、高平均出力を実現するためには、ポンプ光源の研究開発の他に、ポンピングによるTi:サファイア結晶温度の上昇が出力に与える影響、結晶内に蓄積されるエネルギーの効率的な抽出、結晶の熱歪みによるレーザー波面の歪み補正などが研究開発課題となっている。

このためここでは、全固体波長可変レーザー開発の第1段階として半導体レーザーで励起する高繰り返しNd:YAGレーザーでポンピングするTi:サファイアレーザーの熱特性と増幅特性について報告する。

## 2. 実験装置

試験に使用した高繰り返し全固体波長可変レーザーシステムの構成を図1に示す。システムは、Ti:サファイアレーザーとそのポンプレーザーから構成される。

ポンプレーザーは、半導体レーザーで励起するNd:YAGレーザーでNd:YAGレーザー発振器と2台の増幅器より構成される。波長1064 nmの基本波の平均出力は約40 W、発振繰り返し数は1 kHzである。このポンプレーザーで発生する基本波を寸法10 mm x 10 mm x 10 mm (長さ) のKTP結晶 (KTP-1) で波長532 nmのグリーン光に変換する。この時のグリーン光の最大平均出力は約20 W、その空間強度分布はニアガウシアンである。このグリーン光はTi:サファイアレーザー増幅器のポンピングに使用する。最初の波長変換で残った平均出力約20 Wの基本波を第二のKTP結晶 (KTP-2) で再度グリーン光に変換し、Ti:サファイア発振器のポンピングに使用する。これら2本のグリーン光の時間波形はほぼ同一で、パルス時間幅は約20 nsである。

Ti:サファイアレーザー発振器は、水冷したTi:サファイア結晶、波長チューニング用の複屈折フィルター、共振器ミラーより構成される。Ti:サファイア結晶の寸法は、4 mm x 4 mm x 10 mm (長さ) でTi<sup>3+</sup>イオンのドーピング濃度は0.15 W%である。共振器の後部ミラーは、グリーン光の透過率が95%で、700 nm~800 nmの波長の光の反射率が90%である。出力ミラーは、グリーン光の反射率が98%、700 nm~800 nmの波長の光の透過率が50%である。波長選択用複屈折フィルターは2枚構成で、約1 nmの波長幅のレーザー光を発生できる。Ti:サファイアレーザー増幅器用の結晶は水冷したアルミホルダー内に置かれ、その寸法は6.5 mm x 10 mm x 12 mm (長さ)、Tiイオンのドーピング濃度は発振器と同じ0.15 W%である。Ti:サファイアレーザー発振器からのレーザー光は焦点距離50 cmの単レンズで集光しTi:サファイアレーザー増幅器に入射される。シングルパス増幅では増幅器を1回通過した場合の、またダブルパスではTi:サファイアレーザー光を折り返し結晶内を通過させた場合の増幅特性を測定する。

図2は試験装置の写真で、奥がポンプ用のNd:YAGレーザーで、左側にNd:YAGレーザー発振器、その右側に増幅器が、また手前に最初の波長変換用のKTP結晶 (KTP-1) がある。この結晶で波長変換されなかった基本波は、右側のKTP結晶 (KTP-2) で再び波長変換される。手前の右側にTi:サファイアレーザー発振器が、その左側にTi:サファイア増幅器用結晶を納めたアルミニウム製ホルダーが見える。

### 3. 実験結果及び考察

図3に、ポンプ用のNd:YAGレーザーで発生するグリーン光の平均出力(●)と変換効率(■)を示す。基本波をまずKTP-1に通すと約50%の効率で平均出力約20 Wのグリーン光が得られる。残った基本波をさらにもう一個のKTP-2で波長変換すると平均出力約5 Wのグリーン光が発生する。これらの2つのレーザーパルスの時間波形は図4に示すようにほぼ等しい。実験ではKTP-2結晶で発生したグリーン光の出力を調整して発振器のポンピングに、また、最初のKTP-1結晶で波長変換したグリーン光を増幅器のポンピングに使用する。

図5に、Ti:サファイアレーザー発振器の発振波長域と平均出力を示す。この時のポンプレーザー入力は2 Wである。発振器は共振器ミラーの特性により720 nm~800 nmの波長域で発振し、最大出力は790 nmの波長で得られる。以下の熱増幅特性は、最大出力の得られる発振波長790 nmで測定する。

図6は、ポンプレーザー入力に対するTi:サファイア発振器の時間特性で、●がレーザーの発振遅れ時間を、■がレーザーパルスの時間幅を示す。利得スイッチモードで動作するこのレーザーでは、利得が小さいほどレーザーパルスが立ち上がる時間が遅れ、それと同時にパルス幅も長くなる。このため、発振器と増幅器より構成されるシステムではポンプ入力の違いにより増幅特性が変化する。ポンプ入力を変化させた測定の結果、図から分かるようにTi:サファイアレーザーパルスの発振の遅れ時間及びパルス幅の変化はポンプ光の入力と共に変化し、入力が高いほどポンプレーザーパルス入射時点からの立ち上がり時間が短縮され、0.5 Wの約400 nsから2.5 Wでは70 nsまで短くなり、それ以上入力を増しても大きな変化は観測されない。また、そのときのレーザーパルス幅も入力増加に伴い狭くなり、100 nsから20 nsec程度に狭まり、それ以上の入力では大きな変化は見られない。このため以下の測定は、Ti:サファイアレーザー発振器へのポンプレーザー入力を2~3 Wの範囲で行う。

図7は、ポンプレーザーが入射する端面近くでの結晶表面温度と蛍光寿命の関係を示したものである。●は冷却しない結晶を1 kHzの繰り返し数でポンピングした表面温度である。▲は結晶をレーザー光1パルスで照射した場合に発生する蛍光の寿命である。図に示すように、自然放熱の場合1 kHzの繰り返し数では結晶内の熱が除去できず、熱が蓄積し結晶の温度が上昇する。この結果、結晶温度が常温から100℃に上昇し、この結果蛍光寿命は常温の約3分1の1  $\mu$ sにまで短くなる。これは結晶温度が上昇すると無輻射遷移が増加するためである<sup>10)</sup>。一方、結晶を1パルスのレーザー光で照射すると結晶内部の温度



上昇は無視できる。同じ温度で蛍光寿命を比較すると1パルスでの照射では蛍光寿命が約  $0.7 \mu\text{s}$  長くなる。従って、高い繰り返し数のレーザーでTi:サファイア結晶をポンピングすると、表面温度は1パルス照射時と同じでも結晶中心部の温度は上昇していると考えられる。図から蛍光寿命の差を温度差に換算すると、結晶の中心部は表面より約  $30^\circ\text{C}$  高くなっていると推定できる。この時の温度分布を2次元の定常状態の熱伝導方程式によって計算した結果を図8に示す。計算条件は、結晶寸法が  $6.5 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ 、ポンプレーザー入力  $17 \text{ W}$ 、アルミホルダーを冷却する水の温度が  $17^\circ\text{C}$  である。計算の結果、結晶の表面温度は  $17.5^\circ\text{C}$  に冷却されているにもかかわらず、結晶中心部の温度は  $47.5^\circ\text{C}$  に上昇し、結晶表面と中心部に  $30^\circ\text{C}$  の温度差が生ずることが示される。この値は、蛍光寿命から算出した結果と良く一致し、高い平均入力条件では中心部の温度を下げるために結晶冷却温度をより低くする必要のあることが分かる。

図9は、Ti:サファイアレーザー発振器の繰り返し数が  $1 \text{ kHz}$ 、ポンプレーザー入力  $17 \text{ W}$ 、結晶温度  $17^\circ\text{C}$  のTi:サファイアレーザー増幅器の増幅特性を、シングルパス (●) とダブルパス (▲) について測定した結果である。また、それぞれの増幅利得測定結果を■と▼で示した。Ti:サファイア増幅器の出力は、レーザー光入力の増加に伴って増大し、シングルパス増幅では、 $340 \text{ mW}$  の入力で平均出力  $1.1 \text{ W}$  が得られる。一方、増幅されたTi:サファイアレーザー光を再度増幅するダブルパス増幅では同じ入力で  $1.6 \text{ W}$  の平均出力が得られる。この増幅特性を次のFrantz-Nodvikの式を用いて解析した<sup>11)</sup>。

$$J_{\text{output}} = J_{\text{sat}} \ln \left( 1 + G_0 \left\{ \exp \left( \frac{J_{\text{input}}}{J_{\text{sat}}} \right) - 1 \right\} \right)$$

ここで、 $J_{\text{output}}$  は増幅後の出力、 $J_{\text{sat}}$  はTi:サファイアの飽和フルーエンス ( $J_{\text{sat}} = h\nu / \sigma$ ) で約  $0.85 \text{ J/cm}^2$  である。 $G_0$  は小信号利得、 $J_{\text{input}}$  は増幅器への入力である。計算結果は測定値に近い結果を与える。

図10は、ポンプレーザー入力を変化させた場合のTi:サファイアレーザー出力を示したものである。波線はシングルパス増幅時の出力を、実線はダブルパス増幅時の出力である。この結果、出力は、ポンプレーザー入力や、増幅器入力の増加に伴い増大すること、また、結晶内のパス回数の増加によって増大することが分かる。ポンピングによって結晶内に蓄積されるエネルギーは次式で与えられる。

$$J_{store} = J_{pump} \left( 1 - e^{-\alpha l} \right) \frac{\lambda_{pump}}{\lambda_{in}}$$

ここで、 $J_{store}$ はTi:サファイア結晶内に蓄積されるエネルギー、 $J_{pump}$ はポンプエネルギー、 $\lambda_{pump}$ はポンプレーザー波長、 $\lambda_{in}$ はTi:サファイアの波長である。この式より、17 Wのポンピング入力では、蓄積エネルギーは約11 mJである。これに対してTi:サファイアレーザー光として引き出される効率 $\eta$ 、即ちエネルギー抽出効率は次のように与えられる。

$$\eta = \frac{(J_{output} - J_{input})}{J_{store}}$$

シングルパルス時の出力は入力0.3 Wに対して約1 Wであり、入射エネルギーに対する効率は蓄積エネルギーに対するエネルギー抽出効率は約6.3 %である。一方、ダブルパス増幅では、出力は1.6 Wであり、エネルギー抽出効率は12 %と約2倍に改善されている。これはTi:サファイアの飽和エネルギーが約0.85 J/cm<sup>2</sup>と大きく、低い入力では効率良く結晶内に蓄積されたエネルギーを引き出すことができないためであり、折り返し増幅を行うことによって入力エネルギーが増加し、抽出効率が改善されていることが分かる。

図11にTi:サファイアレーザーパルスの空間強度分布をシャッター付きCCDカメラを用いて測定した結果を示す。(a)が発振器レーザーパルスの、また(b)が増幅後の強度分布である。測定の結果、ビームは何れも多少縦長となっている。これは、Nd:YAGレーザーに3 mm x 6 mmの断面の縦長のスラブ結晶を使っており、ポンプ光であるグリーン光も縦長のビーム形状となっているためである。このビーム形状をガウシアンフィットすると、X方向では0.9、またY方向では0.8の係数が得られる。また、このビーム形状は、発振器の調整に大きく依存する。

#### 4. まとめ

全固体波長レーザーシステムを試作し、その発振特性を測定した。高繰り返し・高平均入力時の結晶内温度は表面温度よりかなり高く、十分な冷却が必要であることが明らかになった。また、ダブルパス増幅によって、平均出力1.6 Wを得たが、エネルギー抽出効率は約12 %と色素レーザーに比べてかなり低い。

このため今後は、これまでに得られたデータを基に結晶冷却温度の最適化、マルチパス増幅によるエネルギー抽出効率の増大を図りながら高平均出力化・高効率化を目指す。

$$J_{store} = J_{pump} \left(1 - e^{-\alpha l}\right) \frac{\lambda_{pump}}{\lambda_{in}}$$

ここで、 $J_{store}$ はTi:サファイア結晶内に蓄積されるエネルギー、 $J_{pump}$ はポンプエネルギー、 $\lambda_{pump}$ はポンプレーザー波長、 $\lambda_{in}$ はTi:サファイアの波長である。この式より、17 Wのポンピング入力では、蓄積エネルギーは約11 mJである。これに対してTi:サファイアレーザー光として引き出される効率 $\eta$ 、即ちエネルギー抽出効率は次のように与えられる。

$$\eta = \frac{(J_{output} - J_{input})}{J_{store}}$$

シングルパルス時の出力は入力0.3 Wに対して約1 Wであり、入射エネルギーに対する効率は蓄積エネルギーに対するエネルギー抽出効率は約6.3 %である。一方、ダブルパス増幅では、出力は1.6 Wであり、エネルギー抽出効率は12 %と約2倍に改善されている。これはTi:サファイアの飽和エネルギーが約0.85 J/cm<sup>2</sup>と大きく、低い入力では効率良く結晶内に蓄積されたエネルギーを引き出すことができないためであり、折り返し増幅を行うことによって入力エネルギーが増加し、抽出効率が改善されていることが分かる。

図11にTi:サファイアレーザーパルスの空間強度分布をシャッター付きCCDカメラを用いて測定した結果を示す。(a)が発振器レーザーパルスの、また(b)が増幅後の強度分布である。測定の結果、ビームは何れも多少縦長となっている。これは、Nd:YAGレーザーに3 mm x 6 mmの断面の縦長のスラブ結晶を使っており、ポンプ光であるグリーン光も縦長のビーム形状となっているためである。このビーム形状をガウシアンフィットすると、X方向では0.9、またY方向では0.8の係数が得られる。また、このビーム形状は、発振器の調整に大きく依存する。

#### 4. まとめ

全固体波長レーザーシステムを試作し、その発振特性を測定した。高繰り返し・高平均入力時の結晶内温度は表面温度よりかなり高く、十分な冷却が必要であることが明らかになった。また、ダブルパス増幅によって、平均出力1.6 Wを得たが、エネルギー抽出効率は約12 %と色素レーザーに比べてかなり低い。

このため今後は、これまでに得られたデータを基に結晶冷却温度の最適化、マルチパス増幅によるエネルギー抽出効率の増大を図りながら高平均出力化・高効率化を目指す。

## 参 考 文 献

- 1) V.I.Mishin, S.K.sekatskii, V.N.Fedoseev, N.B.Buyanov, S.Letokhov, A.E.Barzak, V.I.Deisov, A.G.Dernyatin, V.I.Ivanov, I.Ya,Chubukov, and G.D.Alkhazov,"Resonance photoionization spectroscopy and laser separation of  $^{141}\text{Sm}$  and  $^{164}\text{Tm}$  nuclear isomers," Opt. Commun., 61(6),383-386(1987)
- 2) U.Krönert, J.Bonn, H.J.Kluge, W.Ruster, K.Wallmeroth, P.Peuser and N.Trautmann,"Laser resonant ionization of plutonium," Appl. Phys. B 38,65-70(1985)
- 3) P.Peuser, G.Herrmann, H.Rimke, P.Sattelberger, N.Trautmann, W.Ruster, F.Ames, J.Bonn, H.J.Kluge, U.Krönert and E.W.Otten,"Trace detection of plutonium by three-step photoionization with a laser system pumped by a copper vapor laser," Appl. Phys. B 38,249-253(1985)
- 4) G.A.Capelle, J.P.Young, D.L.Donohue and D.H.Smith," Laser bandwidth effects in resonance ionization spectroscopy of Nd," J.Opt. Soc. Am. B 4(4), 445-451(1987)
- 5) K.Avicola, H.Bissinger, J.Bräse, C.Chocol, D.Gavel, H.Friedman, C.Max, J.Morris, D.Sivinski, and K.Waltjen,"Laser guide stars and adaptive optics for large astronomical telescope" in Annual Meeting, Vol.17 of 1991 OSA Technical Digest Series, p.210
- 6) Y.Maruyama, M.Kato, A.Sugiyama, "A narrow linewidth dye laser with double-prism beam expander,"Opt. commun. 81(1991)67
- 7) 舟山正宏、向原克治、森田浩之、岡田龍雄、前田三男、朝長成行、泉順、"パルスレーザー励起Ti:サファイアレーザー増幅器の特性解析と設計、" 光学、24 (1995) 104
- 8) Y.Maruyama, M.Oba, M.Kato, T.Arisawa,"Characteristics of LD-pumped Nd:YAG green laser system," OSA TOPs on Advanced Solid-State Lasers 369-372 (1996)
- 9) M.Oba, Y.Maruyama, M.Kato, T.Muramatsu, "Laser diode pumped high average power Nd:YAG green laser," in Technical digest of Conference on Lasers and Electro-Optics Europe (Hamburg, Germany) paper CThI55, 1996
- 10) P.F.Moulton, " spectroscopy and laser characteristics of  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ ," J. Opt. Soc. Am. B 3 (1986)125
- 11) L.M.Frantz and J.S.Nodvic,"Theory of pulse propagation in a laser amplifier," J. Appl. Phys. 34(1963)2346

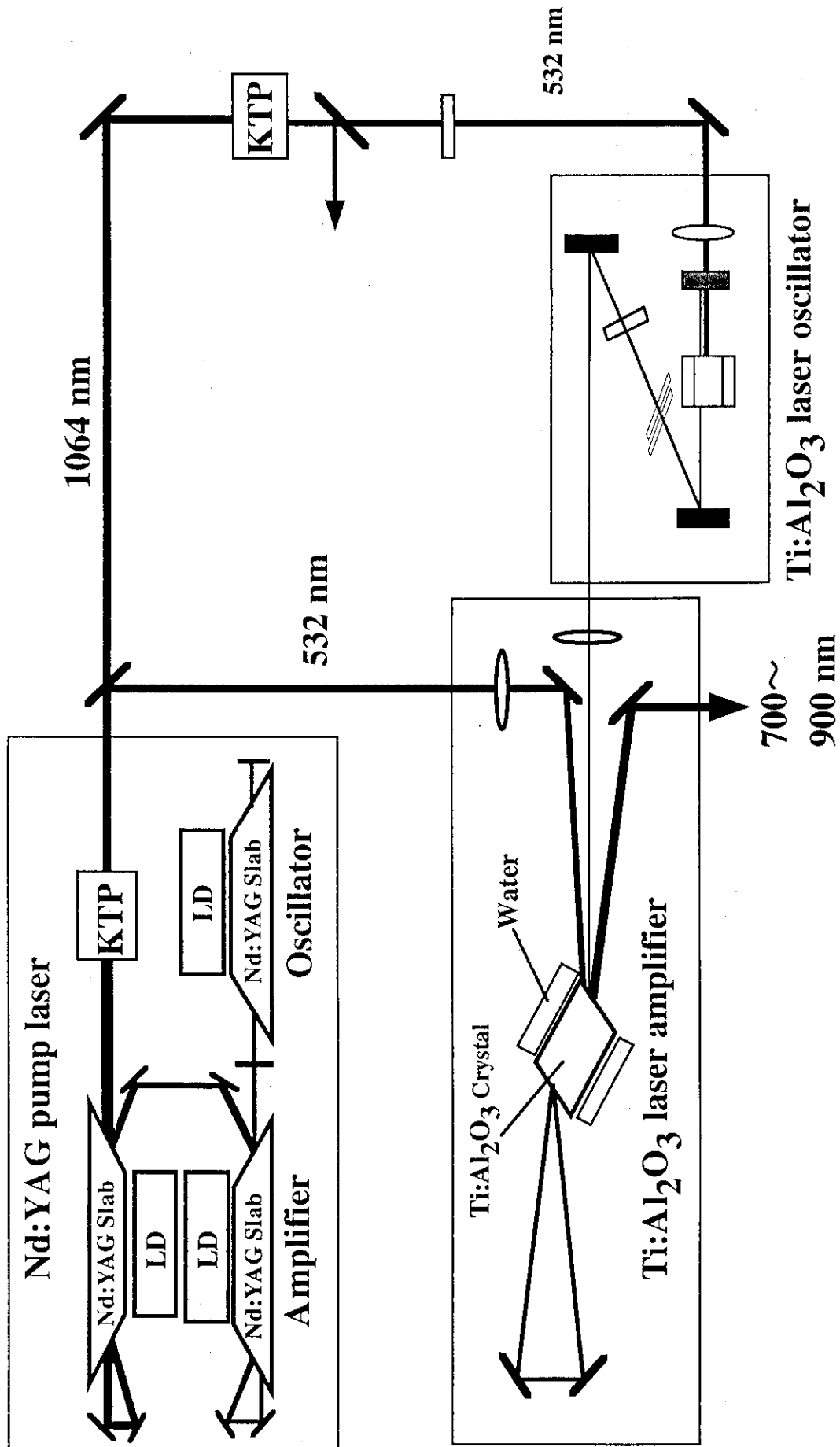


図 1 Schematic of all solid state wavelength tunable laser

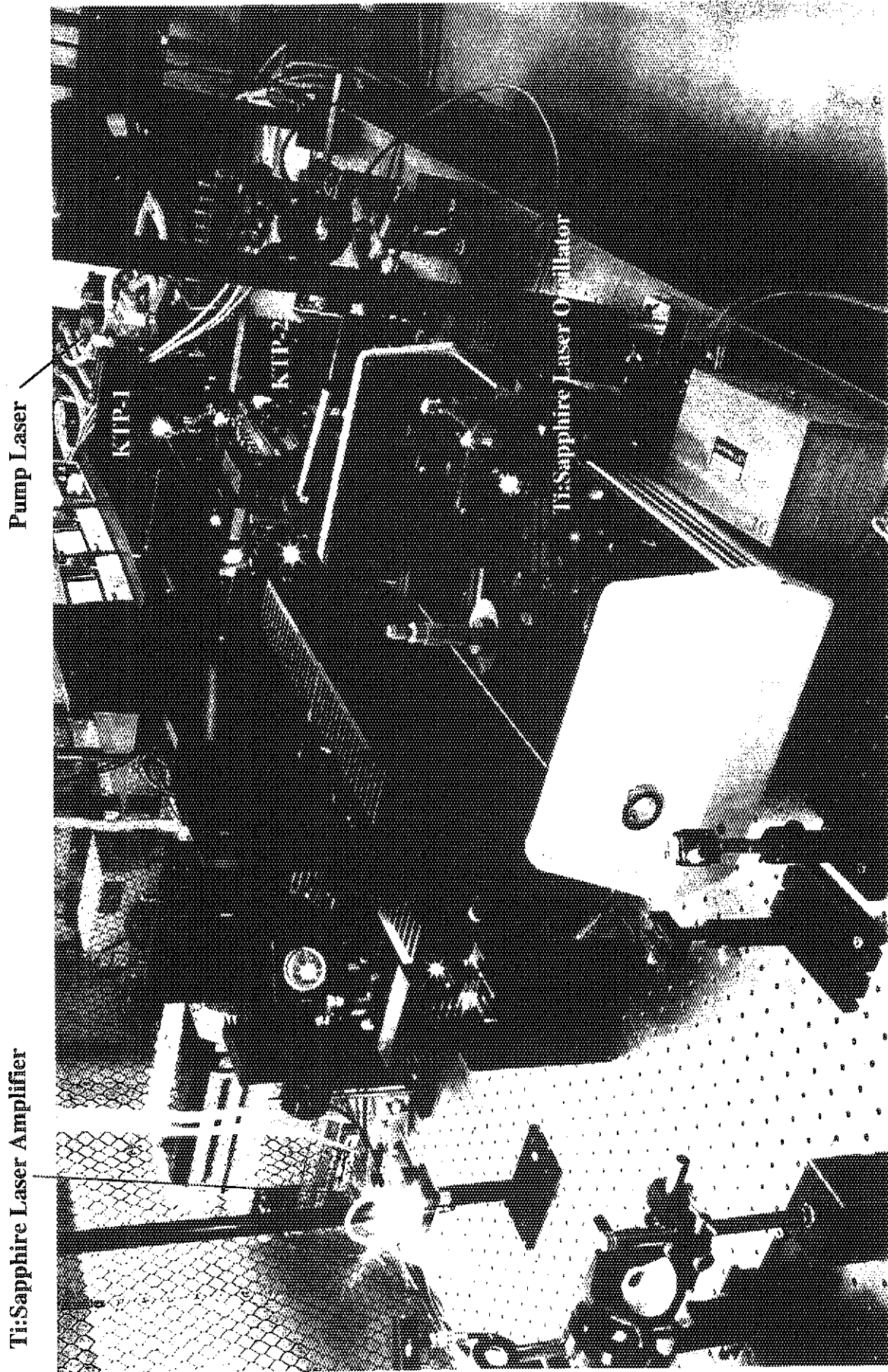


図 2 All solid state wavelength tunable laser system

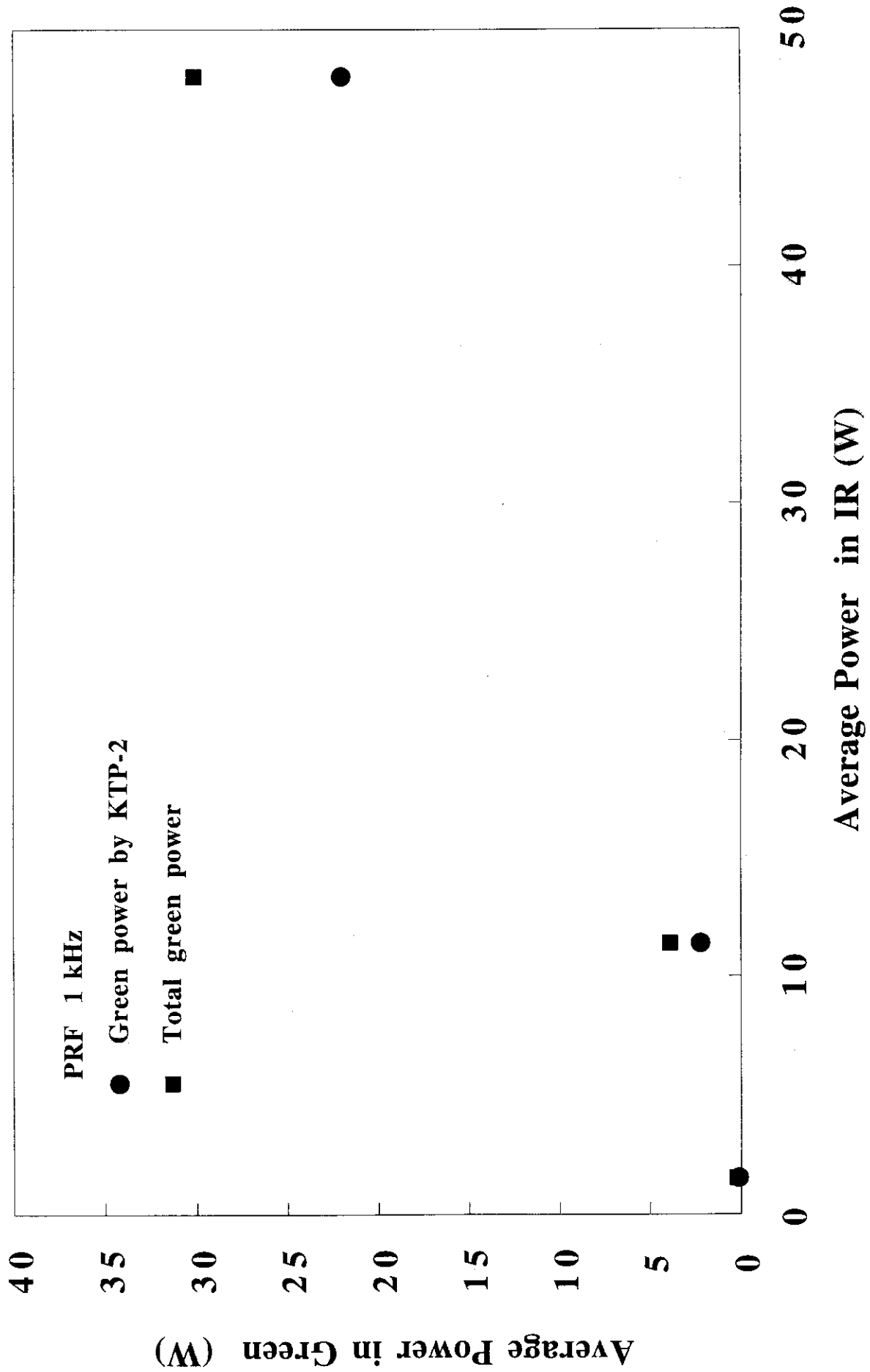


Fig. 3 Green laser average power as a function of fundamental average power

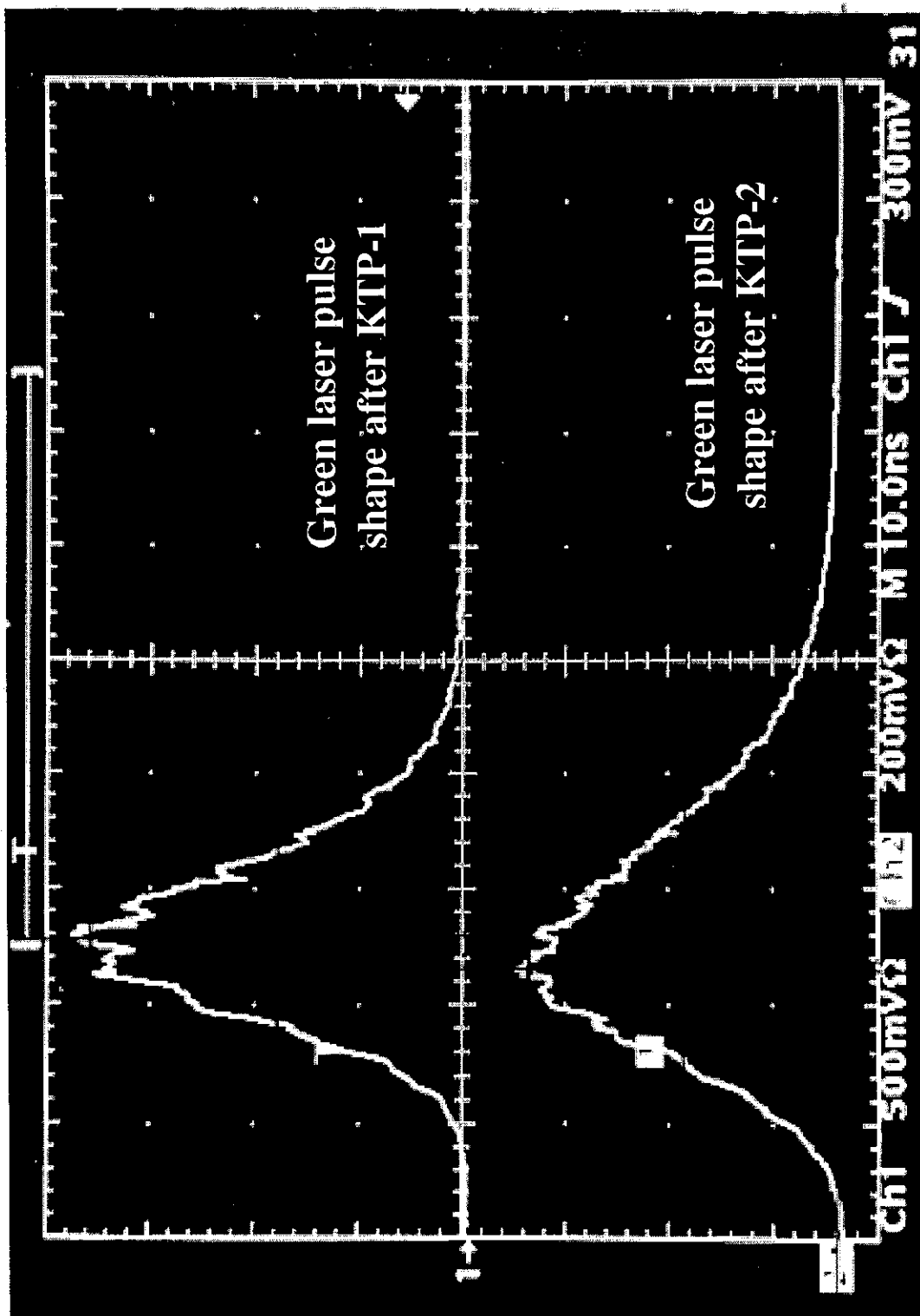


図4 Pump laser pulse shape



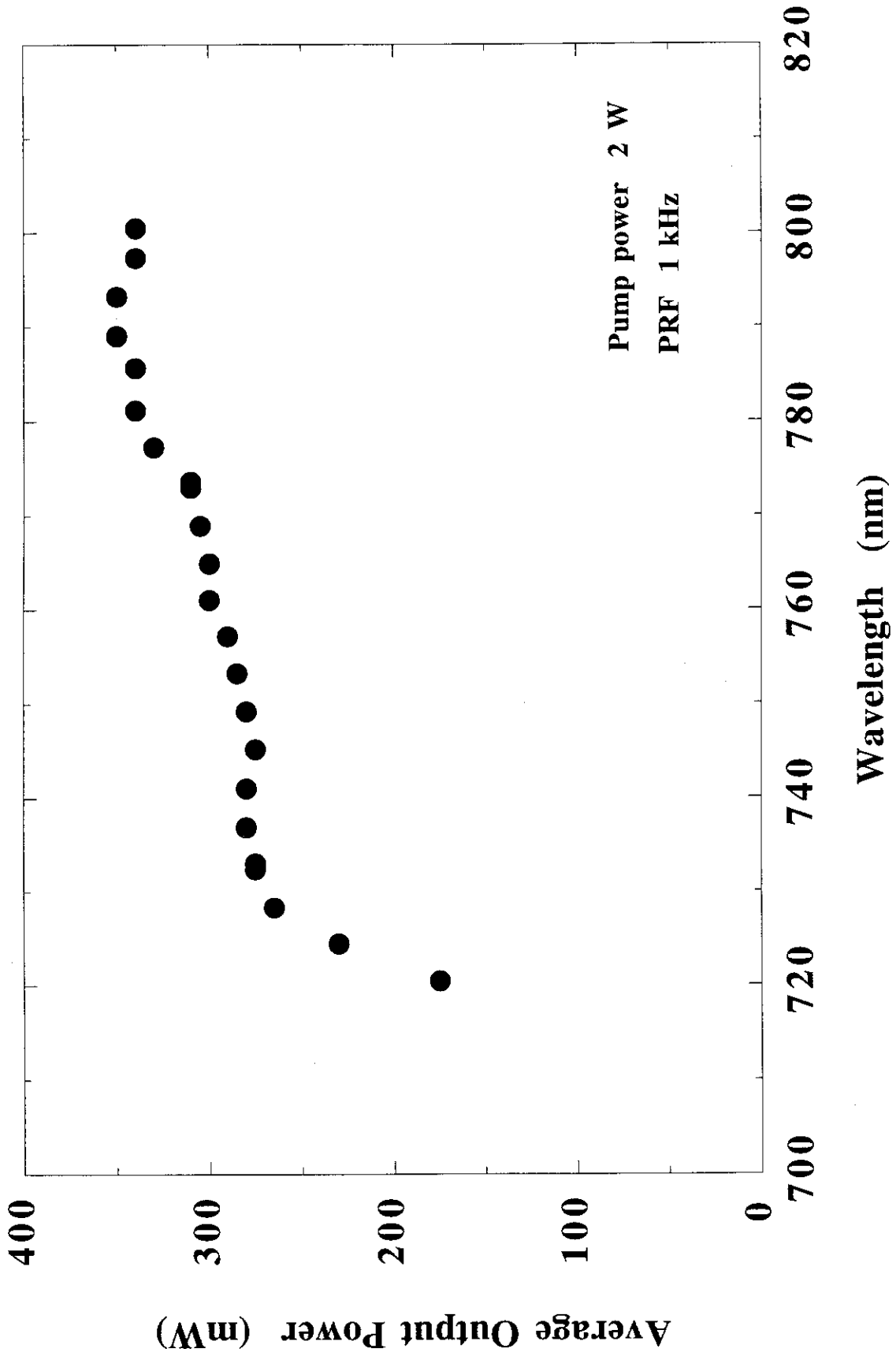
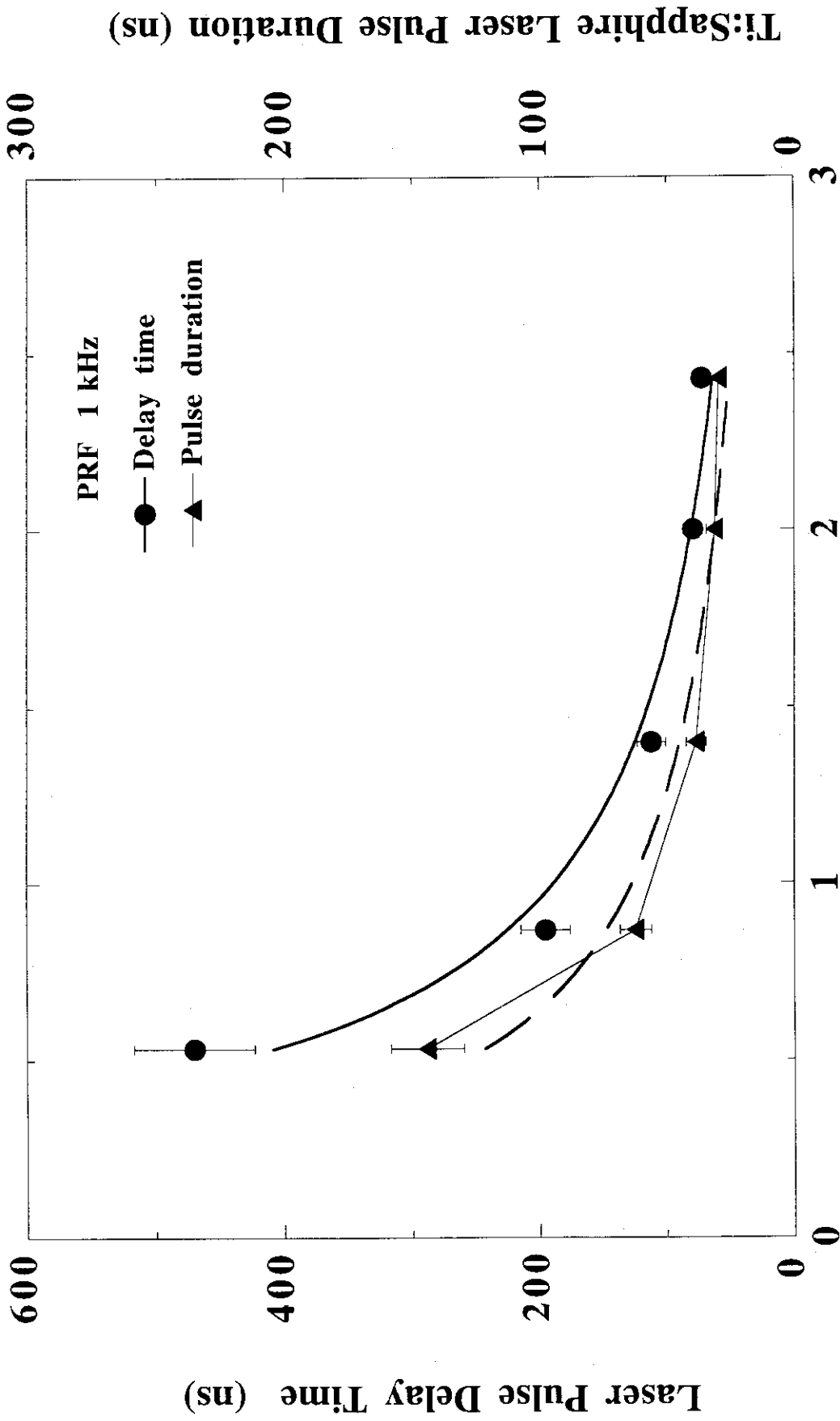


図5 Average output power of Ti:Sapphire laser oscillator



Ti:Sapphire Laser Oscillator Pump Energy (mJ)

Fig. 6 Laser pulse delay time and pulse duration of Ti:Sapphire laser oscillator as a function of pump laser energy

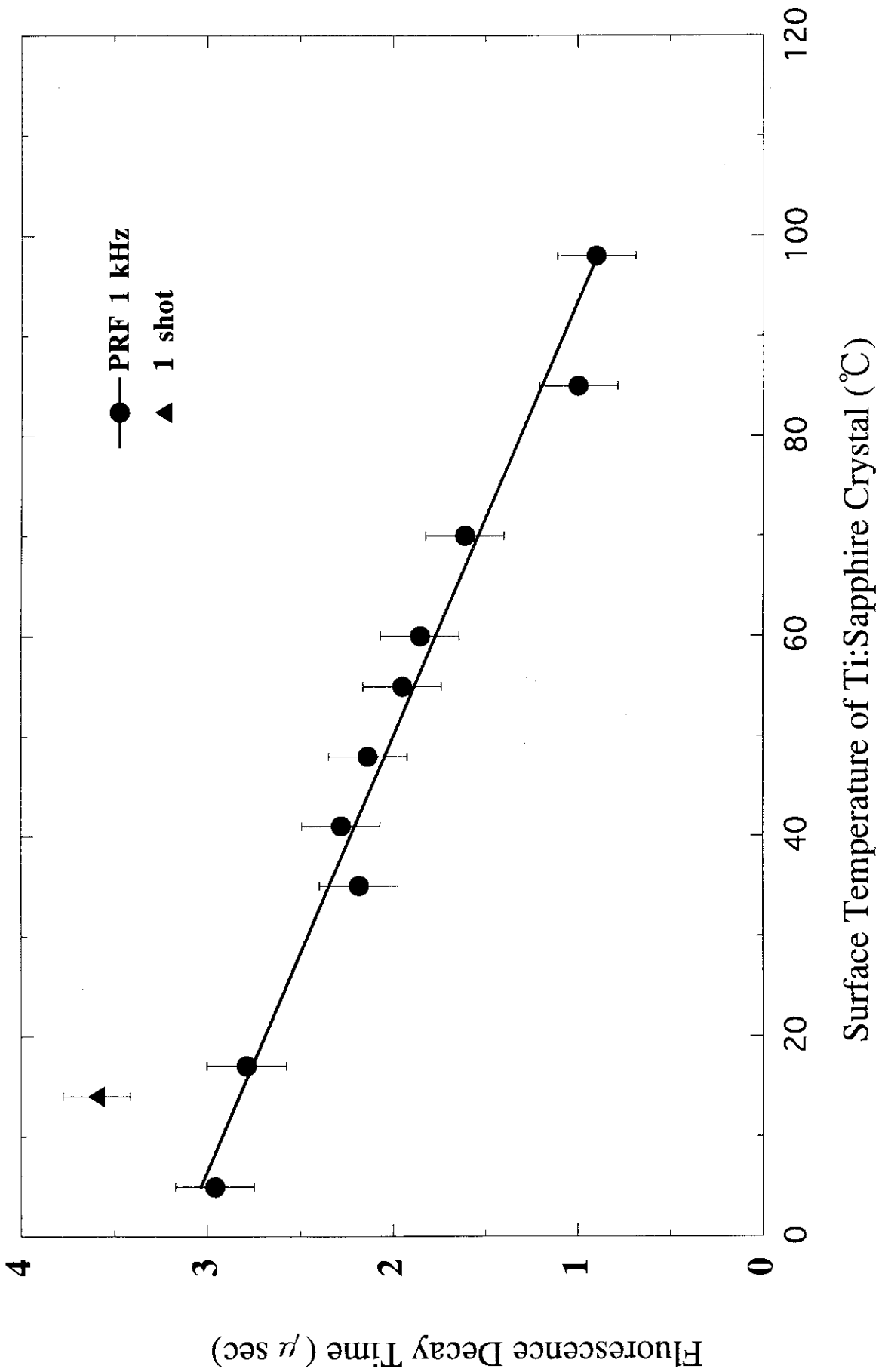


Fig 7 Fluorescence decay time as function of surface temperature of the crystal

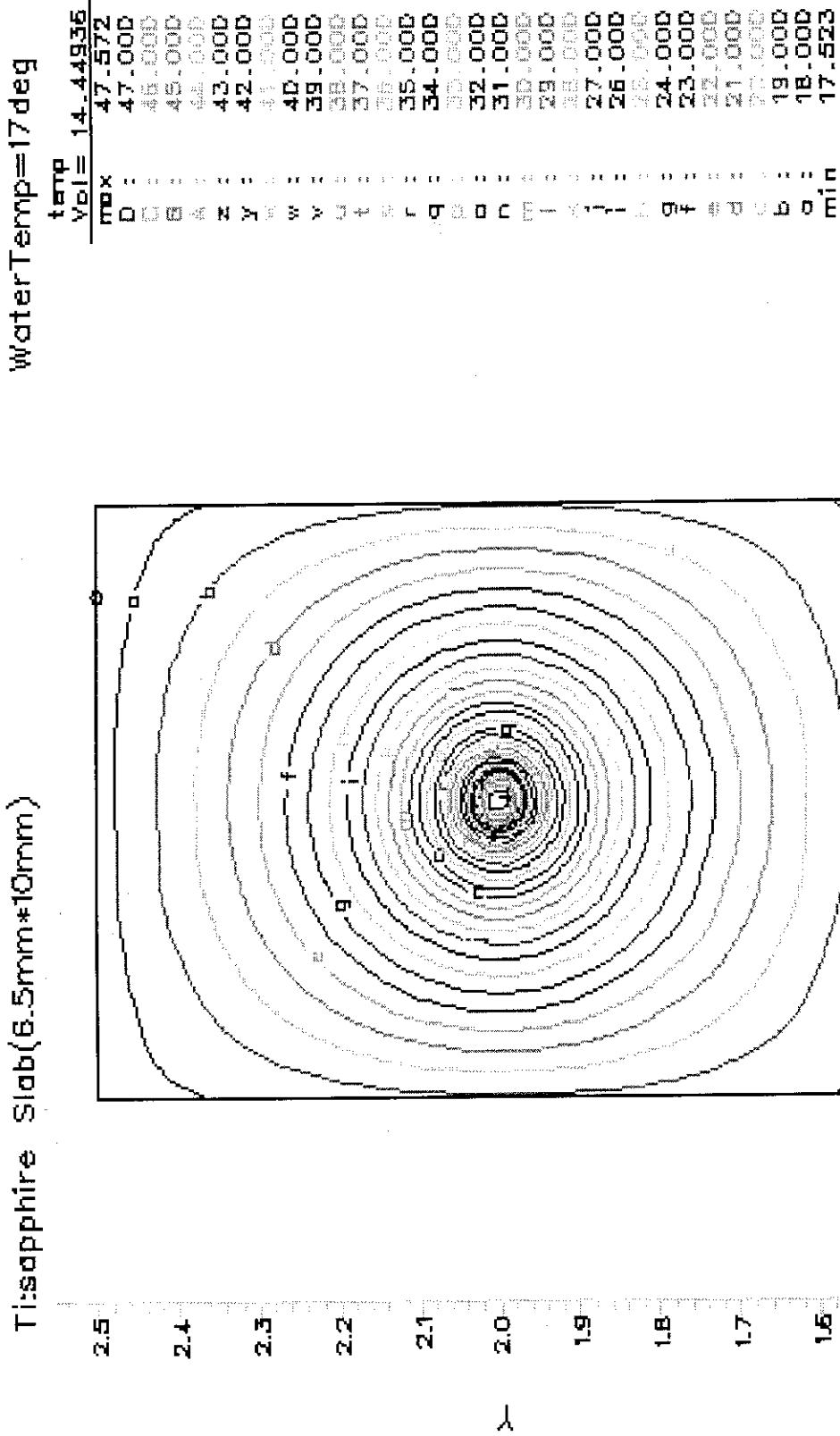


Fig 8 Temperature distribution in Ti:sapphire crystal

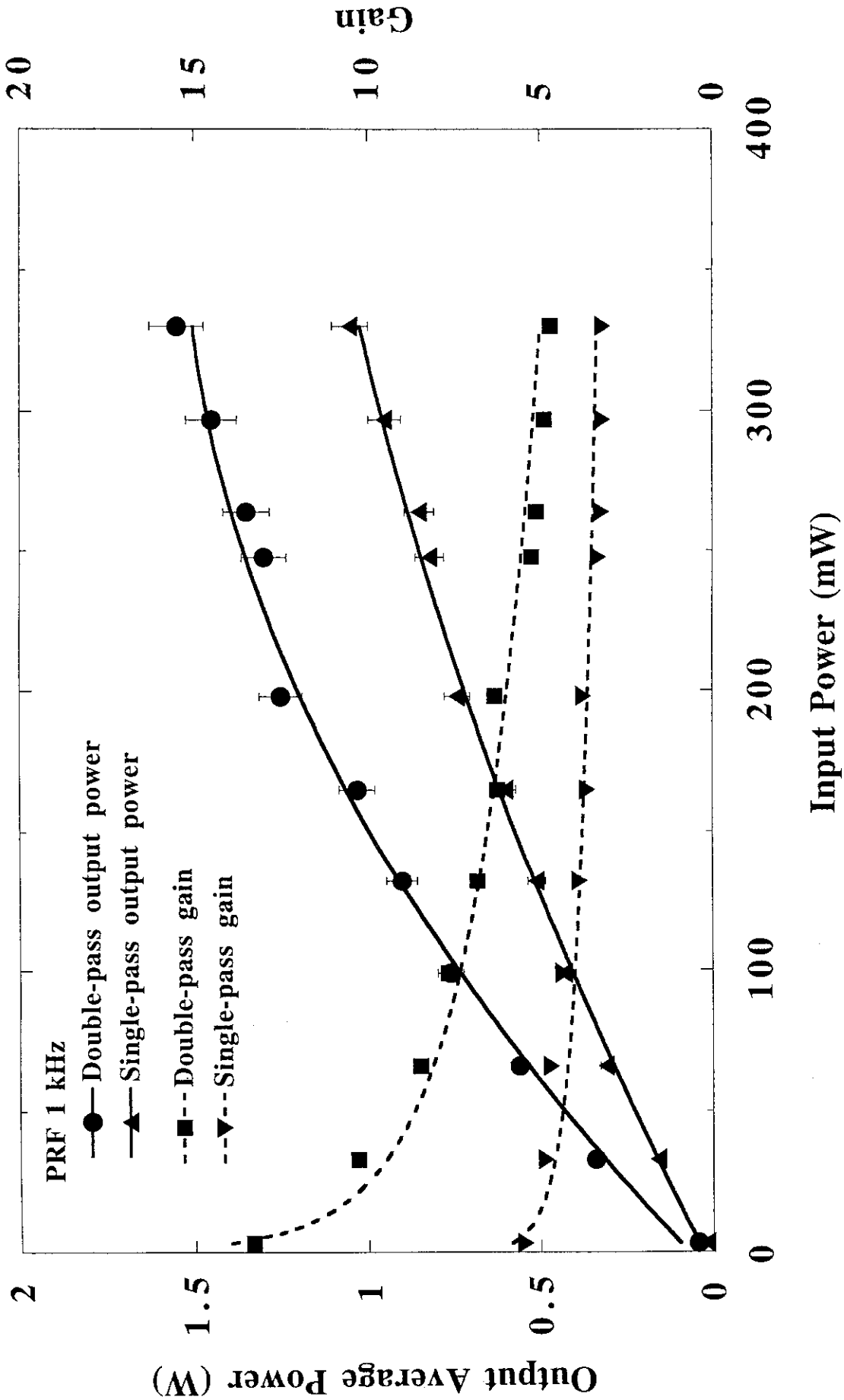


Fig. 9 Amplification characteristics of Ti:sapphire laser amplifier

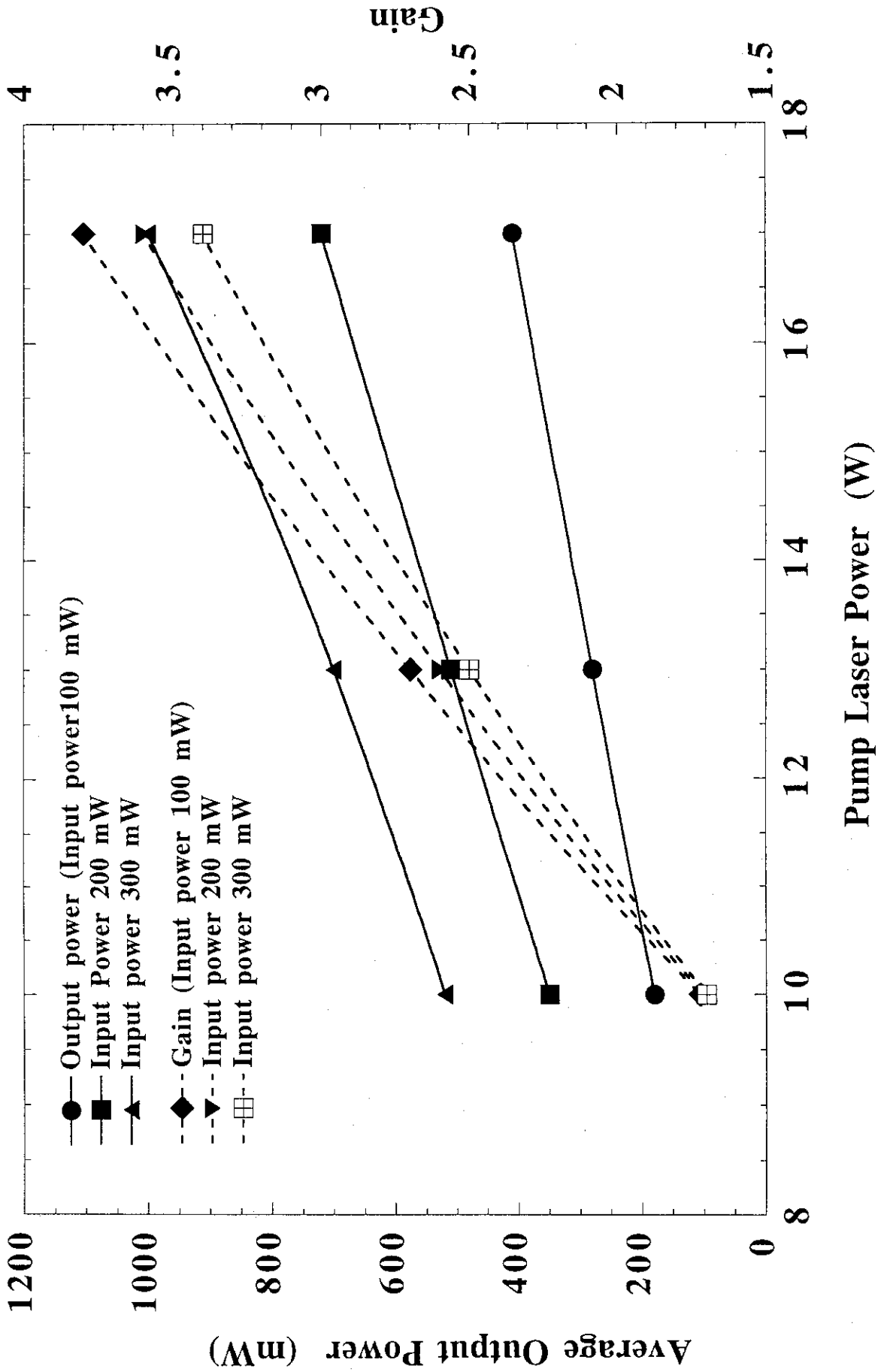


Figure 10 Average power and gain as a function of pump laser power

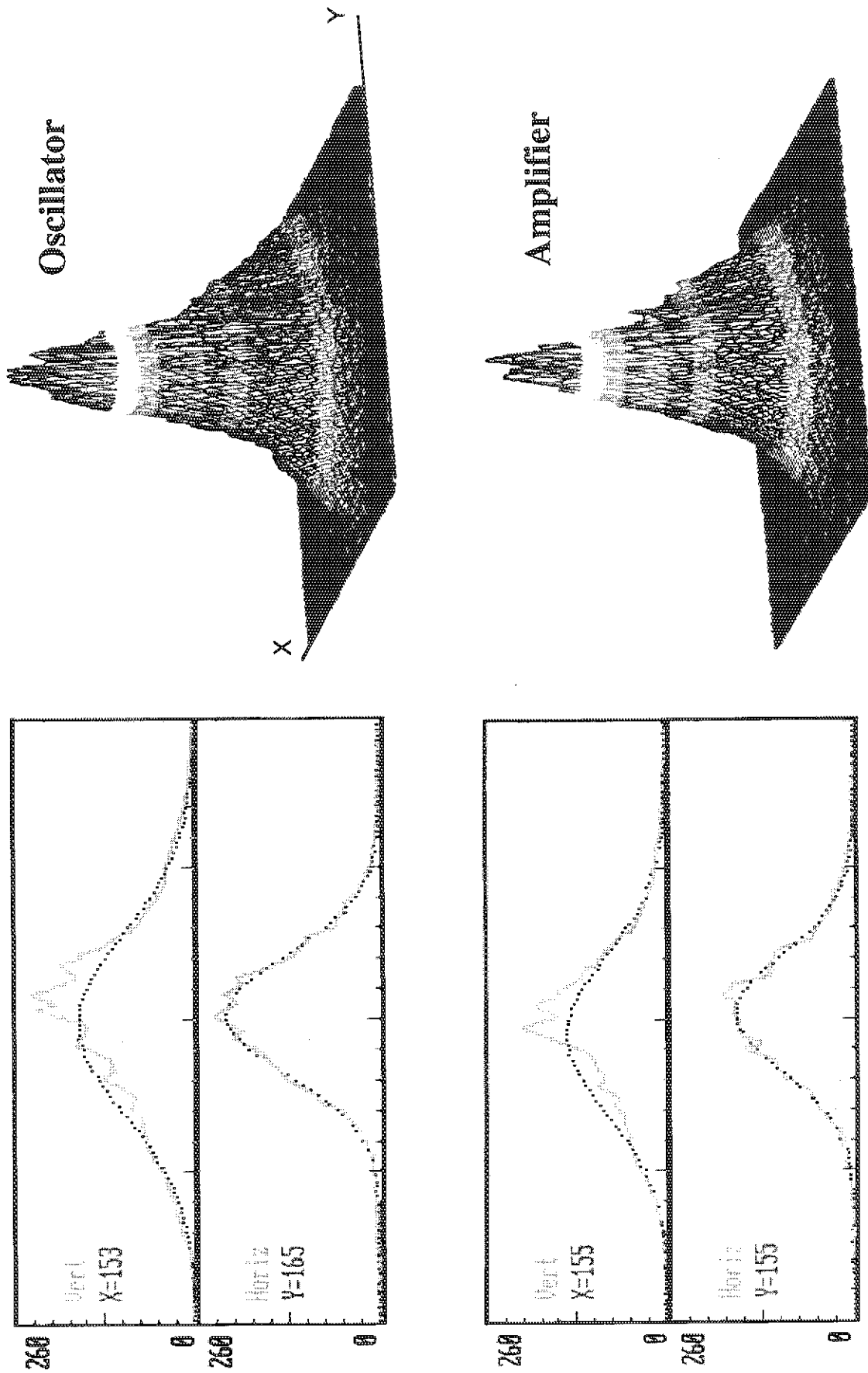


Fig. 11 Intensity distribution of Ti:Sapphire laser pulse